

⑩ 日本国特許庁 (JP)

⑪ 特許出願公開

⑫ 公開特許公報 (A)

昭59-152852

⑬ Int. Cl.<sup>3</sup>  
B 32 B 27/28

識別記号  
1 0 1  
1 0 2

庁内整理番号  
6921-4F  
6921-4F  
6652-4F

⑭ 公開 昭和59年(1984)8月31日

発明の数 2  
審査請求 未請求

// B 32 B 7/12

(全 7 頁)

⑮ 積層体およびその製造方法

⑯ 特 願 昭58-28860

⑰ 出 願 昭58(1983)2月22日

⑱ 発 明 者 赤沢敏幸

倉敷市玉島乙島671-4

⑲ 発 明 者 田中偉業

倉敷市昭和2-2-35

⑳ 発 明 者 大堰幸雄

倉敷市酒津1660

㉑ 出 願 人 株式会社クラレ

倉敷市酒津1621番地

㉒ 代 理 人 弁理士 本多堅

明 細 書

1. 発明の名称

積層体およびその製造方法

2. 特許請求の範囲

(1) (A) エチレン成分含有率 20 ~ 55 モル%、鹼化度 90 モル% 以上のエチレン-酢酸ビニル共重合体鹼化物樹脂層、

(B) ポリスチレン系樹脂層および

(C) エチレン成分-酢酸ビニルもしくは(メタ)アクリル酸エステル成分-エチレン性不飽和カルボン酸もしくは該カルボン酸無水物成分からなる重合体よりなり、かつ周波数 110 Hz で測定された複素弾性率の実数部が 20 ~ 70 ℃ の範囲において、下記 (I) 式を満足する接着性樹脂層からなり、(C) を介して (A) および (B) を積層した積層体。

$$8.0 - 0.0145T < \log E' < 10.0 - 0.0286T \cdots (I)$$

$E'$ : 110 Hz で測定した複素弾性率の実数部  
(dyne/cm<sup>2</sup>)  
T: 温度 (℃)

(2) 複素弾性率の実数部が下記 (II) 式である特許請求の範囲第 1 項に記載の積層体。

$$8.5 - 0.0214T < \log E' < 9.5 - 0.0257T \cdots (II)$$

(3) (A) エチレン成分含有率 20 ~ 55 モル%、鹼化度 90 モル% 以上のエチレン-酢酸ビニル共重合体鹼化物樹脂、

(B) ポリスチレン系樹脂層および

(C) エチレン成分-酢酸ビニルもしくは(メタ)アクリル酸エステル成分-エチレン性不飽和カルボン酸もしくは該カルボン酸無水物成分からなる重合体よりなり、かつ周波数 110 Hz で測定された複素弾性率の実数部が 20 ~ 70 ℃ の範囲内において下記 (I) 式を満足する接着性樹脂を、(C) を介して (A) および (B) を共押出しし、3 m/分 以上の速度で引き取る事の特徴とする積層体の製造方法。

$$8.0 - 0.0145T < \log E' < 10.0 - 0.0286T \cdots (I)$$

$E'$ : 110 Hz で測定した複素弾性率の実数部  
(dyne/cm<sup>2</sup>)  
T: 温度 (℃)

(4) 複素弾性率の実数部が下記(II)式を満足する  
特許請求の範囲第5項記載の積層体の製造方法。

$$8.5 - 0.0214T < \log E < 9.5 - 0.0257T \dots\dots (II)$$

### 3. 発明の詳細な説明

本発明は優れたガスバリアー性を有し、かつ各樹脂層間の接着力が良好な共押し積層体に関する。更に詳しくは(A)エチレン-酢酸ビニル共重合体酸化物樹脂層と(B)ポリスチレン系樹脂層とを(C)特定の粘弾性的性能を満足するエチレン系樹脂層を介して積層した積層体およびこれを高速で共押し出して得られる積層体の製造方法に関する。

近年の食品包装業界の技術革新はめざましい。例えば衛生性、美しい外観、運搬コストの低減の為に軽量化を目的としてポリスチレンなどの熱可塑性樹脂が食品包装に用いられつつある事は周知の事である。しかしながらこれらのポリスチレン系樹脂は酸素とか、炭酸ガスなどのバリアー性が低く、食品、炭酸飲料などの長期保存には適さず、ガラス瓶、金属缶などが多く用いられており、空缶の路上への投げすてによる公害とか、ビン

収に要するコストなど多くの問題があり、代替包装材料の開発がなされている。

エチレン成分が20～55モル%のエチレン-酢酸ビニル共重合体酸化物樹脂は熔融成形性があり、かつ気体透過性が低く、かつ透明性が高く、ガスバリアー性がすぐれた材料として食品容器、包装材料としてすぐれた特性をそなえている。しかしながら他の諸物性、例えば剛性とか、耐湿性などに欠点があり、充分満足すべきものではない。

これに対し、ポリスチレン系樹脂、とくに耐衝撃性ポリスチレン樹脂は成形性、耐衝撃性と剛性とのバランス、衛生性などはすぐれているが、酸素や炭酸ガスなどのガスバリアー性が充分でなく、食品類を長期間にわたって保存することができないので食品容器、包装材料としての使用に制限がある。

そこでエチレン-酢酸ビニル共重合体酸化物の良好なガスバリアー性とポリスチレン系樹脂の優れた力学特性をそなえ合せた食品容器、包装材料を得るためにこれらの両者の樹脂層を積層するこ

とが考えられる。しかしながら、これらの両樹脂層は相互にはほとんど親和性がなく、単なる熱接着により積層物を得ることは不可能である。

相互に接着性のないポリスチレン系樹脂とガスバリアー性樹脂とを不飽和カルボン酸またはその酸無水物の成分濃度が0.001～10重量%である変性エチレン-酢酸ビニル共重合体あるいはアイオノマーより選ばれた接着性樹脂を介して熔融共押し出す事の特徴とする樹脂積層物の製造法は特開昭54-46281号公報で公知である。該公報にはガスバリアー性樹脂としてエチレン-酢酸ビニル共重合体酸化物、ポリアミド樹脂、塩化ビニリデン樹脂、熱可塑性ポリエステル等の多くの樹脂を接着性樹脂を介して、ポリスチレン系樹脂と積層できる事を示している。接着性樹脂としては不飽和カルボン酸またはその酸無水物の成分濃度が0.001～10重量%である変性エチレン-酢酸ビニル共重合体(変性EVA)あるいはアイオノマーを用いる事により熔融共押し出して積層できる事を示し、その優位性を示している。ホットプ

レスによる長時間の加圧、加温による積層であるとか、共押し出にあつても0.5 m/分以下の極めて小さい速度で長時間をかけて積層を行う時は該公報に開示された方法により行うことのできる場合もある。しかしながら工業的にこなわれる様な速度で共押し出積層を行う時は該公報に開示された方法で実施したのでは、十分な接着性能を示さず、また成形上のトラブルがあり、商品としての価値のあるものは得られない。

この様な実情に鑑み、本発明者らは~~高速共押し出し~~共押し出し時の接着性樹脂の必要特性の考察に基づき、接着性樹脂の諸物性と共押し出し接着性との関係を鋭意検討を行なつた結果、特定範囲の粘弾性的性質を満す接着性樹脂を使用する事により~~高速~~<sup>(高速度)</sup>で共押し出しを行なつた時にも充分な接着性能を有する事を見出し、本発明に至つたものである。この事は単に酢酸ビニル成分もしくは酸成分を有する樹脂とか、酢酸ビニル成分と酸成分の両者を有する樹脂を用いて、ポリスチレン系樹脂層とエチレン-酢酸ビニル共重合体酸化物樹脂層とを積層

するという前述の公報の記載からは全く予想できない事であり、まさにおどろくべきことである。

すなわち本発明は(A)エチレン成分含有率20～55モル％、鹼化度90モル％以上のエチレン-酢酸ビニル共重合体鹼化物樹脂層、

(B)ポリスチレン系樹脂層および

(C)エチレン成分-酢酸ビニルもしくは(メタ)アクリル酸エステル成分-エチレン性不飽和カルボン酸もしくは該カルボン酸無水物成分からなる重合体よりなり、かつ周波数110 Hzで測定された複素弾性率の実数部が20～70℃の範囲において、下記(I)式を満足する接着性樹脂層からなり、(C)を介して(A)および(B)を積層した積層体およびこれらを共押出しして3m/分以上の速度で引き取る事の特徴とする積層体の製造方法である。

$$8.0 - 0.0143T < \log E' < 10.0 - 0.0286T \quad \text{--- (I)}$$

$$\left[ \begin{array}{l} E' : 110 \text{ Hz で測定した複素弾性率の実数部} \\ \quad (\text{dyne/cm}^2) \\ T : \text{温度} (^{\circ}\text{C}) \end{array} \right]$$

本発明の目的とする所は良好な層間接着性を有

し、かつポリスチレン系樹脂のすぐれた力学的特性とエチレン-酢酸ビニル共重合体鹼化物樹脂のすぐれたガスバリアー性をあわせてもち、食品容器、包装材料としてすぐれた積層体を工業的に得る事である。

本発明の最大の特徴は(C)層の接着性樹脂として、エチレン成分-酢酸ビニルもしくは(メタ)アクリル酸エステル成分-エチレン性不飽和カルボン酸もしくは該カルボン酸無水物成分からなる重合体であり、かつ周波数110 Hzで測定された複素弾性率の実数部が20～70℃の範囲内において下記(I)式、好適には(II)式を満足する接着性樹脂を使用することである

$$8.0 - 0.0143T < \log E' < 10.0 - 0.0286T \quad \text{--- (I)}$$

$$\left[ \begin{array}{l} E' : 110 \text{ Hz で測定した複素弾性率の実数部} \\ \quad (\text{dyne/cm}^2) \\ T : \text{温度} (^{\circ}\text{C}) \end{array} \right]$$

$$8.5 - 0.0214T < \log E' < 9.5 - 0.0257T \quad \text{--- (II)}$$

本発明において重要なことは複素弾性率の実数部が接着性特に共押出成形の接着性に極めて重要

な要点である事を見出し、さらにエチレン-酢酸ビニル共重合体鹼化物の2次転移点附近もしくはそれ以下の温度から冷却温度の間の複素弾性率の実数部の値によつて共押出の接着性が大きく影響を受ける事を見出した事である。すなわち、本発明は接着性樹脂がエチレン成分-酢酸ビニルもしくは(メタ)アクリル酸エステル成分-エチレン性不飽和カルボン酸もしくは該カルボン酸無水物成分からなる重合体よりなり、かつ周波数110 Hzで測定された複素弾性率の実数部が20～70℃において、上記(I)式、好適には(II)式を満足することによつて普通の速度の共押出しはもちろん、高速度の共押出しによつても共押出の接着性が著しく向上することを見出したものである。

複素弾性率の実数部が(I)式の範囲により大きい時は押出し後冷却までの間に層間にうける応力の緩和が充分でない為か、接着力の低いものしか得られないし、(I)式より小さい時は樹脂の高温での硬変力が弱い為か、接着力が弱いものであつたり、共押出成形においてトラブルが発生するの

でこのましくない。このことは後述する実施例および比較例から明らかである。

本発明においては複素弾性率の実数部が20～70℃において上記(I)式を満足することが重要である。ここで20℃は共押出成形する際の冷却工程におけるポリマーの温度に相当するものであり、70℃はエチレン-酢酸ビニル共重合体鹼化物の2次転移点もしくはその附近の温度に相当するものであり、共押出後多少冷却された点でのポリマーの温度に相当するものである。共押出し接着性はこの20～70℃の複素弾性率の実数部の値によつて大きく影響を受けるものである。すなわち共押出接着性はポリマーを共押出しし、冷却して積層体を得る際のポリマーの温度の変化(70℃から20℃へ)の過程における複素弾性率の実数部の値によつて大きく影響を受けるものである。

エチレン成分と酢酸ビニルもしくは(メタ)アクリル酸エステル成分の含有率は特に制限はないが重量比で90対10から50対50の範囲が良

好である。(メタ)アクリル酸エステル成分としては(メタ)アクリル酸メチルエステル、(メタ)アクリル酸エチルエステル、(メタ)アクリル酸2-エチルヘキシルエステル、(メタ)アクリル酸ブチルエステルなどが用いられる。エチレン性不飽和カルボン酸もしくは該カルボン酸無水物成分としては特に制限はないが、マレイン酸、アクリル酸、イタコン酸、無水マレイン酸などが0.05～5重量%の範囲で用いられる。またこれらの成分は共重合、さらにはグラフト重合など公知の方法により導入される。これらの重合体のうち、エチレンと酢酸ビニルの共重合体にエチレン性不飽和カルボン酸無水物をグラフトしたものが好適に使用される。

(C)層として用いられる接着性樹脂の製造方法としては、たとえばエチレンと酢酸ビニルの共重合体にエチレン性不飽和カルボン酸無水物をグラフトしたものを製造する場合、そのグラフトに用いる開始剤の種類、その量、グラフトモノマーの種類、その量、温度、圧力などの反応条件、溶剤の

種類、その量など、さらにはエチレンと酢酸ビニルの共重合体の種類、その重合度、酢酸ビニル成分の含有量など複素弾性率の実数部の温度依存性に影響をうける条件を適宜選択することによつて、目的とする接着性樹脂を得ることができる。(C)層の接着性樹脂の具体的な製法としてはたとえば後述する実施例において記載されている方法があげられる。複素弾性率の実数部の温度依存性は、明確ではないが、導入される酸基の連鎖の長さ、構造、さらには分岐、架橋などの樹脂の微細構造などにより決定されるのではないかと推定される。

次に本発明において(A)層として用いる樹脂はエチレン成分含有率20～55モル%、酸化度が90モル%以上のエチレン-酢酸ビニル共重合体酸化物である。エチレン成分の含有率が20モル%未満であると得られた酸化樹脂の熔融成形が困難であり、55モル%を超えるとガスバリアー性が低下する傾向にあるので、好ましくない。酢酸ビニル成分の酸化度は90モル%以上である。90モル%未満であるとガスバリアー性が低い

かりでなく、耐熱性、耐水性などの諸物性も低下する傾向にあり、好ましくない。

(B)層に用いるポリスチレン系樹脂としてはスチレンの重合体、耐衝撃性ポリスチレンとして広く業界で知られている所のブタジエーン-スチレンラバー存在下にスチレンの重合を行うゴム配合ポリスチレン樹脂、さらにはABSとして広く業界に知られているアクリロニトリル-ブタジエーン-スチレン系樹脂、透明性の耐衝撃性のポリスチレンとして知られているスチレン成分の多いスチレン-ブタジエンブロック共重合体などが用いられる。

共押出しによる接着性は単なる熱プレス圧着による接着強度測定結果から推定できるものではなく、殆んどの場合、共押出しすると接着性は極めて低下する。とくに共押出しし、高速度で引き取る場合はその低下は激しい。これは成形機通過後も積層体が短時間のうちに冷却されながら引き伸ばされる事によるものと思われる。ところが本発明の接着性樹脂を使用することにより共押出しし、上記のごとき3m/分以上の速度で引き取っても強

い接着性を示すものであり、これによつて生産性の向上が計られることになり工業的意義はきわめて大きい。ここで引き取り速度とはポリマーを共押出しし、冷却する過程で、ポリマーの温度が40℃に低下した箇所での引き取り速度をいう。

この様にして得られた積層体の各層の厚さに特に制限はないが(A)層は5～70μ(C)層は5～90μ(B)層は50～1000μの範囲が好適である。

また得られた積層物は各層間の接着力は充分なものであり、かつポリスチレン系樹脂のすぐれた力学的特性とエチレン-酢酸ビニル共重合体酸化物のすぐれたバリアー性能をあわせもち、まことにすぐれた食品容器(カップ、ボトルなど)、包装材料として有用なものである。

本発明に使用した(C)層樹脂はTダイ法あるいはリングダイ法による押出し成形法においてすぐれた効果を示すものであるが、さらにブロー成形法などに用いてもその成形サイクルを短縮し、より成形速度を速くする事ができるなどその有用性は卓越したものである。この場合(B)のポリスチレン

樹脂層は内層にきてもよいし、また外層にきても差し支えない。また積層物としては(A)-(C)-(B)、(B)-(C)-(A)-(C)-(B)、(A)-(C)-(B)-(C)-(A)などの多層構造とすることができる。また必要に応じ、これらの積層物に他の樹脂層(たとえばポリエチレン、ポリプロピレンなどのポリオレフィン層)を積層することもできる。

以下実施例により本発明をさらに説明するが、本発明はこれらの実施例により限定されるものではない。

#### 実施例 1

EVAFLEX P-2805 {三井ポリケミカル社製：エチレン-酢酸ビニル共重合体(酢酸ビニルの含有量28重量%)} 100重量部及び無水マレイン酸8重量部を精製したキシレン500重量部に溶解し、130℃に保った。この溶液にベンゾイルパーオキシド1重量部をキシレン20重量部に溶解させた溶液を攪拌下に2時間にわたって滴下し、つづいて30分間攪拌をつづけた。冷却後、大量の精製アセトン中に反応溶液を加え、ポリマーを析

出させた。得られたポリマーを精製したキシレンを溶剤とし、精製したアセトンを非溶剤として再沈精製を行なった。このものをIR法及びNMR法で分析した所、無水マレイン酸成分を2.8重量%含有していた。得られたポリマーをホットプレスにより、厚さ0.0214cm、巾0.5021cm、長さ2,000cmのシートを作成し、東洋測器工業製の直統式動的粘弾性測定器(DDV-II)を用い、複素弾性率の温度依存性を測定した所、第1図に示すとおり本発明の範囲を満足するものであつた。

このようにして得た接着性樹脂を(C)層とし、酢酸ビニル成分の含有率が56モル%であるエチレン酢酸ビニル共重合体の酢酸ビニル成分の99.5モル%を酸化する事によつて得た $[\eta] = 0.096$  dl/g (フェノール/水=85/15混合液、30℃で測定)のエチレン酢酸ビニル共重合体酸化物樹脂を(A)層とし、耐衝撃性ポリスチレン(「スタロイン470」旭ダウ社製)を(B)層樹脂とし、次のような方法で積層体を得た。

内径60mmφの押出機I、内径40mmφの押出

機II、内径90mmφの押出機IIIの三台の押出機を備え、各押出機からの溶融材料が一つのダイ内でおのおのマニ-ホールドによつて広げられた後、当該ダイ内で一に合流して複層化されるタイプのフラットダイ式の三層共押し装置を用いて、押し出し機Iには(A)層樹脂を、押し出し機IIには(C)層樹脂を、押し出し機IIIには(B)層樹脂を供給し、ダイ温度220℃、引取り速度7m/分(引き取り速度は冷却ローラ上で樹脂の温度が40℃になつたときに測定した)で共押し出しを行い、(A)/(C)/(B)の三層構成の波状紋のないきれいな積層体を得た。各層の厚みは(A)層が50μ、(B)層が250μ、(C)層が15μであり、各層間の剝離強度は(A)/(C)間で1.9kg/cm、(B)/(C)間で1.6kg/cmと良好な接着性を示した。

#### 比較例 1

ユカロンエバ41H {三菱油化社製：エチレン-酢酸ビニル共重合体100重量部に無水マレイン酸3重量部、2,5-ジメチルヘキサノ-2,5-ジハイドロパーオキサイド1.0重量部を添加後、ヘン

ツェルミキサーで混合し、径40φの押し出し機で220℃で押し出し、水冷後ベレット化し、1.1重量%の無水マレイン酸成分を含有するポリマーを得た。このものの複素弾性率の温度依存性を測定した所、第1図に示すとおり本発明の範囲を満足しないものであつた。これは用いたエチレン-酢酸ビニル共重合体の種類、グラフト条件、得られたポリマーの分岐状態(長鎖または短鎖の分岐状態)、架橋構造、分子量、分子量分布などの違いによるものと考えられる。上記ポリマーを(C)層樹脂とする以外は実施例1と同様にして(A)/(C)/(B)の三層構成の共押し出しを試みた。押し出された積層体は波紋のある不良品であつた。該積層体のできるだけ良好な場所を選んで厚みを測定した所、(A)層が40~60μ、(B)層が240~280μ、(C)層が5~20μであつた。又その層間剝離強度は(A)/(C)間で0.4kg/cm、(B)/(C)間で0.1kg/cmであり、接着が外観ともにまったく実用に耐えないものであつた。

#### 実施例 2

EVAFLEX-2505 {三井ポリケミカル社製：エ

チレン-酢酸ビニル共重合体(酢酸ビニル含有量25重量%)を用いる以外は実施例1と同様にしてポリマーを得た。このものをIR法およびNMR法で分析した所、1.9重量%の無水マレイン酸成分を含有していた。該ポリマーの複素弾性率の温度依存性は第1図に示すとおり本発明の範囲を満足するものであつた。

この変性ポリマーを(C)層樹脂とし、酢酸ビニル成分の含有率が67モル%であるエチレン-酢酸ビニル共重合体の酢酸ビニル成分の99.6モル%を鹼化する事によつて得た $[\eta] = 0.112 \text{ g/g}$ のエチレン-酢酸ビニル共重合体鹼化物樹脂を(A)層樹脂とし、耐衝撃性ポリスチレン[スタイロン4750、旭ダウ社製]を(B)層樹脂とし、次のような方法で積層体を得た。

内径60mmφの押出機I、内径45mmφの押出機II、内径90mmφの押出機IIIの押出機を閉え、押出機I,IIにあつては溶融材料が各々二層に分岐後、ダイ内でおおののマニホールドによつて広げられた後、押出機IIIより溶融押出され、マニホー

いて30分間攪拌をつづけた。冷却後、大量のアセトン中に反応溶液を加え、ポリマーを析出し、無水マレイン酸成分を1.7重量%含有するポリマーを得た。このものの複素弾性率の温度依存性を測定した所、本発明の範囲を満足しないものであつた。これはグラフト条件、得られたポリマーの分岐状態(長鎖または短鎖の分岐状態)、架橋構造、分子量、分子量分布などの違いによるものと考えられる。

上記ポリマーを(C)層樹脂とする以外は実施例2と同様にして(A)/(C)/(B)/(C)/(A)の三種五層構成の共押出しを試みた。押出された積層体は不良なものであつた。該積層体のできるだけ良好な所を選んで厚みを測定した所、(A)層が30~35 $\mu$ 、(B)層が270~290 $\mu$ 、(C)層が15~27 $\mu$ であつた。又その層間剝離強度は(A)/(C)間で0.2 kg/cm、(B)/(C)間で0.1 kg/cmとまづたく不良であつた。

#### 比較例3

KVAFLEX-P2505(三井ポリケミカル社製:エチレン-酢酸ビニル共重合体)100重量部及び無

ルドにより広げられた樹脂層にII, Iと順次合流されるタイプのフラットダイ式三種五層共押出し装置を用い、押出機(I)には(A)層樹脂を、押出機IIには(C)層樹脂を、押出機IIIには(B)層樹脂を供給し、ダイ温度220℃、引き取り速度6m/分(引き取り速度は冷却ローラー上で樹脂の温度が40℃になつたときに測定した)で共押出しを行い、(A)/(C)/(B)/(C)/(A)の三種五層の良好な積層体を得た。各層の厚みは、(A)層が45 $\mu$ 、(B)層が280 $\mu$ 、(C)層が20 $\mu$ であり、各層間の剝離強度は(A)/(C)間で1.8 kg/cm、(B)/(C)間で1.4 kg/cmと良好な接着性を示した。

#### 比較例2

エバフレックスP-3307(三井ポリケミカル社製:エチレン-酢酸ビニル共重合体(酢酸ビニル含有量33重量%))100重量部および無水マレイン酸7重量部をキシレン700重量部に溶解し、130℃に保つた。この溶液にベンゾイルパーオキシド10重量部をキシレン20重量部に溶解させた溶液を攪拌下に4時間にわたつて滴下し、つづ

水マレイン酸8重量部をキシレン400重量部に溶解し、110℃に保つた。この溶液にベンゾイルパーオキシド10重量部をキシレン200重量部に溶解させた溶液を攪拌下に1時間にわたつて滴下し、つづいて1.5時間攪拌をつづけた。ただちに大量のアセトン中に反応溶液を加え、ポリマーを析出させた。得られたポリマーをキシレンを溶剤とし、アセトンを非溶剤として再沈精製を行なつた。このものは無水マレイン酸成分を3.2重量%含有していた。得られたポリマーの複素弾性率の温度依存性を測定した所、第1図に示すとおり本発明の範囲を満足しないものであつた。

得られた樹脂を(C)層として実施例2と同様にして共押出しして得た積層体は不良品であつた。該積層体のできるだけ良好な所を選んで厚みを測定した所、(A)層が35~40 $\mu$ 、(B)層が290~310 $\mu$ 、(C)層が14~29 $\mu$ であつた。又その層間剝離強度は(A)/(C)間で0.1 kg/cm、(B)/(C)間で0.5 kg/cmとまづたく不良であつた。

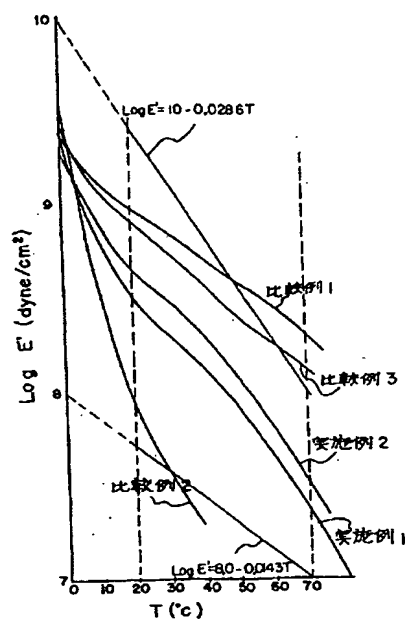
本例においては実施例2に用いたと同じエチレ

ン-酢酸ビニル共重合体 (EVAFLEX P 2505) を用いたにもかかわらず、共押出し積層シートの剝離強度は上述のごとく全く不良なものであつた。これは共重合体の酢酸ビニル成分の含有量とか用いるエチレン性不飽和カルボン酸化合物の種類のみによつて、それから得られた積層体の接着力、外観等の積層体の性能が決定されるものではない事を明確に示している。

#### 4. 図面の簡単な説明

第1図は各種接着性樹脂の複素弾性率の実数部 ( $E'$ ) と温度 ( $T$ ) との関係を示すグラフであり、縦軸は  $\log E'$ 、横軸は温度  $T (^{\circ}\text{C})$  を示す。

特許出願人 株式会社 ク ラ レ  
代 理 人 弁理士 本 多 堅



昭 61. 7. 14 発行

手続補正書

昭和61年4月11日

特許法第17条の2の規定による補正の掲載  
昭和58年特許願第 28860 号(特開 昭  
58-152852 号, 昭和59年 8 月 31 日  
発行 公開特許公報 59-1529 号掲載)につ  
いては特許法第17条の2の規定による補正があっ  
たので下記のとおり掲載する。 2 ( 4 )

Int. Cl. 4	識別記号	序内整理番号
B32B 27/28	101	7112-4F
	102	7112-4F
// B32B 7/12		6617-4F

特許庁長官 宇賀重郎 殿

1. 事件の表示

特願昭58-28860号

2. 発明の名称

積層体およびその製造方法

3. 補正をする者

事件との関係

特許出願人

倉敷市酒津1621番地

(108)株式会社 クラレ

代表取締役 中村 尚夫

4. 代理人

倉敷市酒津青山2045の1

株式会社 クラレ 内

電話 倉敷0864(25)9325(直通)

(6747)弁理士 本 多 堅

(東京連絡先)

株式会社クラレ特許部

電話 東京03(225)4561

5. 補正の対象

明細書の「発明の詳細な説明の欄」

6. 補正の内容

明細書第9頁第15行の「範囲により」を「範囲よ  
と補正する。

方式  
審査

